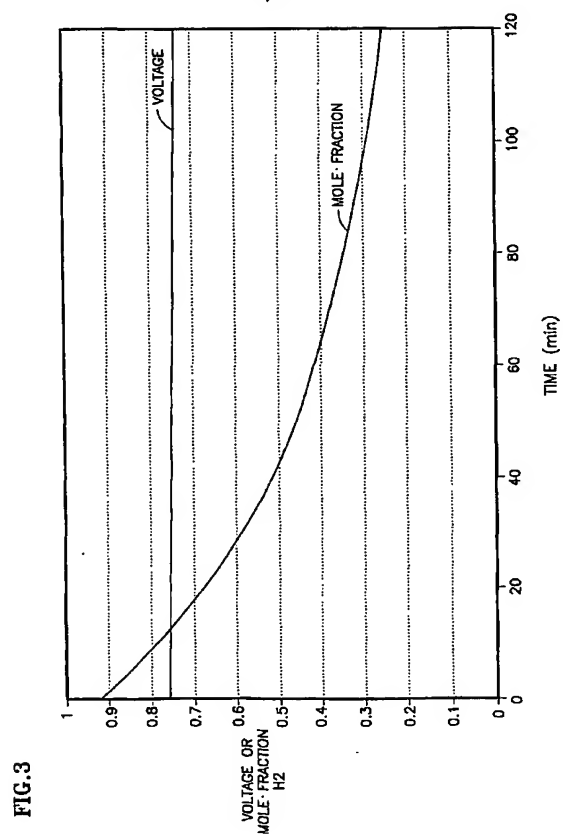


WO 02/069429

PCT/US02/04066

3/3



(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

REVISED VERSION

(19) World Intellectual Property Organization
International Bureau(43) International Publication Date
6 September 2002 (06.09.2002)

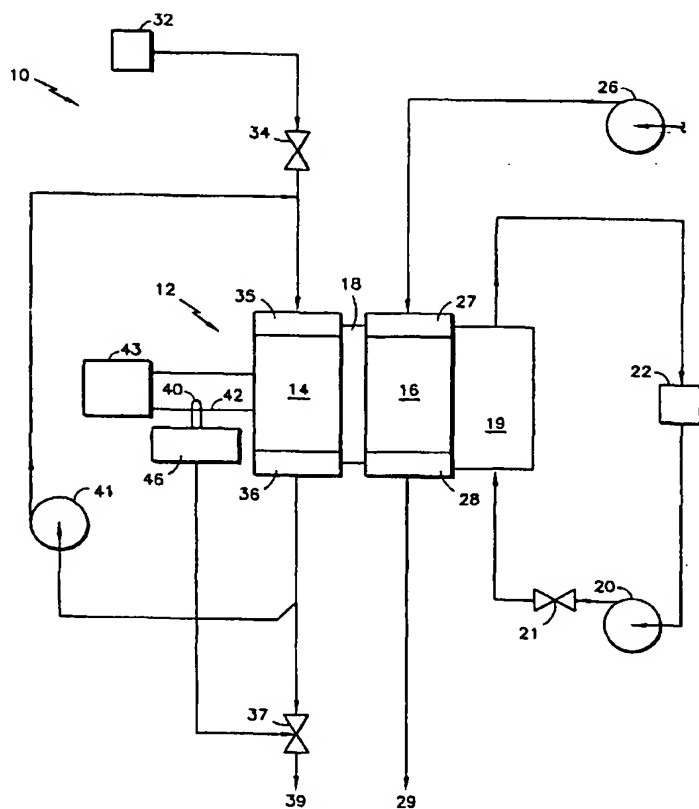
PCT

(10) International Publication Number
WO 02/069429 A1

- (51) International Patent Classification⁷: **H01M 8/04**, 8/18 (72) **Inventor: REISER, Carl, A.**; 25 Orchard Street, Stonington, CT 06378 (US).
- (21) International Application Number: PCT/US02/04006
- (22) International Filing Date: 11 February 2002 (11.02.2002) (74) **Agent: CRENSHAW, Henry, T., Jr.**; Intellectual Property Attorney, UTC Fuel Cells, LLC, 195 Governor's Highway, MS 601-03, South Windsor, CT 06074 (US).
- (25) Filing Language: English
- (26) Publication Language: English (81) **Designated States (national):** AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (30) Priority Data:
09/793,175 26 February 2001 (26.02.2001) US
- (71) Applicant: **INTERNATIONAL FUEL CELLS, LLC** [US/US]; 195 Governor's Highway, South Windsor, CT 06074 (US).

[Continued on next page]

(54) Title: HIGH FUEL UTILIZATION IN A FUEL CELL



(57) **Abstract:** A PEM fuel cell (12) operating on substantially pure hydrogen (32) and air (26) has an exhaust flow control valve (37) at the exit of the anode fuel reactant flow field, said valve being normally closed during steady state low or medium power operation, so that the concentration of nitrogen in the fuel reactant flow fields, by diffusion across the membrane from the cathode, will approach the average concentration of nitrogen in the oxidant, thereby limiting the concentration of hydrogen to a corresponding low complementary amount, which reduces the diffusion of hydrogen across the membrane for consumption at the cathode, thereby increasing the efficiency of operation of the fuel cell. A current sensor (40) allows a controller (46) to open an exhaust flow control valve (37), thereby drawing much higher amounts of hydrogen into the fuel reactant flow field of the anode to support generation of power at high current densities without hydrogen starvation.

WO 02/069429 A1

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2005-507542

(P2005-507542A)

(43) 公表日 平成17年3月17日(2005.3.17)

(51) Int. Cl.⁷

F I

テーマコード (参考)

H O 1 M 8/06

H O 1 M 8/06

B

5 H O 2 6

H O 1 M 8/04

H O 1 M 8/06

S

5 H O 2 7

H O 1 M 8/10

H O 1 M 8/04

J

H O 1 M 8/10

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 23 頁)

(21) 出願番号 特願2002-568448 (P2002-568448)
 (86) (22) 出願日 平成14年2月11日 (2002.2.11)
 (85) 翻訳文提出日 平成15年8月25日 (2003.8.25)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2002/004006
 (87) 国際公開番号 W02002/069429
 (87) 国際公開日 平成14年9月6日 (2002.9.6)
 (31) 優先権主張番号 09/793, 175
 (32) 優先日 平成13年2月26日 (2001.2.26)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

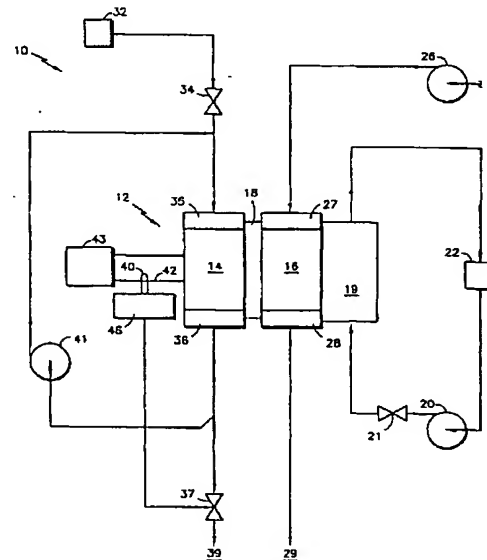
(71) 出願人 500477447
 ユーティーシー フューエル セルズ, エ
 ルエルシー
 アメリカ合衆国, コネチカット, サウス
 ウィンザー, ガーヴァナース ハイウェイ
 195
 (74) 代理人 100096459
 弁理士 橋本 剛
 (74) 代理人 100092613
 弁理士 富岡 深
 (72) 発明者 レイサー, カール, エイ.
 アメリカ合衆国, コネチカット, ストニン
 グトン, オーチャード ストリート 25
 Fターム(参考) 5H026 AA06 CC01 CC03 CC08 CX10
 HH05

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池内の高い燃料利用率

(57) 【要約】

実質的に純水素(32) 空気(26) により作動する P E M 型燃料電池(12) が、アノード燃料反応物流れ場の出口に排気流れ制御弁(37) を有し、この弁は、定常状態の小電力または中電力での作動中に通常は閉になっており、それによって、燃料反応物流れ場の中の窒素の濃度が、カソードから膜を横断する拡散により、酸化剤中の窒素の平均濃度に近づくことになり、それによって、水素濃度が、対応する少ない相補的な量に制限され、膜を横断して拡散しカソードで消費される水素が低減され、それによって、燃料電池の作動効率が向上する。電流検出器(40) によって、制御器(46) は、排気流れ制御弁(37) を開にし、それによって、いっそう大量の水素がアノードの燃料反応物流れ場の中に引き込まれて、水素が枯渇することなく高い電流密度で電力生成が維持される。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

非排出にされた燃料反応物流れ場（35, 14, 36）を有するアノード（14）と、酸化剤流れ場（27, 16, 28）を有するカソード（16）と、前記アノードと前記カソードの間にあるプロトン交換膜（18）と、燃料を前記燃料反応物流れ場に供給するための水素の供給源（32）と、前記燃料反応物流れ場の排出物を前記燃料反応物流れ場の入口（35）に運ぶためのポンプ（41）および前記燃料反応物流れ場を含む燃料再循環ループと、空気を前記酸化剤流れ場に供給するための手段（26）と、を備える燃料電池（12）を作動させる方法であって、
前記手段を作動させて空気（26）を前記酸化剤流れ場に供給し、
前記再循環ループが非排出にされたまま前記供給源（32）からの水素を前記燃料反応物流れ場に供給し、
前記ポンプ（41）を作動させる、
ことを含み、
前記燃料反応物流れ場の中の窒素の濃度が、前記膜を横断する拡散により、前記酸化剤流れ場の中の窒素の平均濃度に到達し、それによって、アノード流れ場の中の水素濃度のパーセントモル分率が、対応する少ない相補的な量にされる、
ことを特徴とする方法。

10

【請求項 2】

前記燃料反応物流れ場（35, 14, 36）に排気弁（37）を設け、
前記燃料電池の電流負荷（43）を測定（40）し、
この電流負荷が所定のしきい値を超えると、前記排気流れ制御弁を開（46）にする、
ことをさらに含むことを特徴とする請求項 1 記載の方法。

20

【請求項 3】

前記所定のしきい値は、燃料電池の最大電流定格の 50% と 80% の間であることを特徴とする請求項 2 記載の方法。

【請求項 4】

前記所定のしきい値は、燃料電池の最大電流定格の約 65% であることを特徴とする請求項 2 記載の方法。

【請求項 5】

約 96% のしきい値大きさを超える水素利用率で前記燃料電池を作動させることをさらに含むことを特徴とする請求項 1 記載の方法。

30

【請求項 6】

約 70% のしきい値大きさを超える酸素利用率で前記燃料電池を作動させることをさらに含むことを特徴とする請求項 1 記載の方法。

【請求項 7】

前記アノード流れ場の中の水素濃度のパーセントモル分率が、15% ～ 20% 程度であることを特徴とする請求項 1 記載の方法。

【請求項 8】

燃料反応物流れ場（35, 14, 36）を有するアノード（14）と、前記燃料反応物流れ場の排出物（36）を前記燃料反応物流れ場の入口（35）に運ぶためのポンプ（41）および前記燃料反応物流れ場を含む燃料再循環ループと、酸化剤流れ場（27, 16, 28）を有するカソード（16）と、前記アノードと前記カソードの間に配置されたプロトン交換膜（18）と、を含む燃料電池（12）と、
空気を前記酸化剤流れ場に供給する手段（26）と、
水素の流れを前記燃料反応物流れ場に供給する手段（32）と、
を備える燃料電池電力設備（10）であって、改良は、
前記燃料反応物流れ場が、非排出にされ、それによって、前記燃料反応物流れ場の中の窒素の濃度が、酸化剤反応物流れ場からの拡散の結果として、酸化剤流れ場の中の窒素のほぼ平均濃度に安定し、それによって、水素濃度が、対応する少ない相補的な量に制限され

40

50

る、ことを特徴とする電力設備。

【請求項 9】

前記燃料反応物流れ場は、排気流れ制御弁（37）を有し、前記電力設備は、さらに、前記燃料電池のための電気負荷（43）と、前記電気負荷に供給される負荷電流を検出（40）するとともにそれを示す電流信号を提供する手段と、前記電流信号に応答するとともに、前記燃料電池の最大電流定格の所定の割合を超える電流の指示に応答して前記排気流れ制御弁を開にする、制御器（46）と、を備えることを特徴とする請求項 8 記載の電力設備。

【請求項 10】

前記所定の割合が、50%と80%の間であることを特徴とする請求項 9 記載の電力設備。

【請求項 11】

前記所定の割合が、約65%であることを特徴とする請求項 10 記載の電力設備。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気生成処理過程において、アノード側の低い燃料濃度の結果として燃料のカソードへの拡散を緩和することによって、水素／空気燃料電池に実質的に全ての燃料反応物を利用させることに関する。

【背景技術】

【0002】

燃料電池の利用率、特に、輸送装置に使用するための水素に富んだ燃料反応物気体と酸化剤気体としての空気とを用いて作動するプロトン交換膜（PEM）型燃料電池の利用率について検討がなされている。全ての燃料を輸送装置に積み込んで運ぶ必要があるのも、また、燃料電池の性能を向上させることができる付属品にそれにもかかわらず燃料電池によって電力を供給する必要があるためによって電力設備全体の効率が低下するので、燃料電池の効率は、最も重要な問題である。燃料電池の性能は、燃料気体が電解質の表面全体に適切に供給されないときはいつもひどい損害を受けることが知られている。従って、アノードにおいて十分な燃料を確実に与えるために燃料反応物の流れの場に過剰の燃料を供給することは、従来技術では一般的な方法であった。しかしながら、アノード燃料の流れの場への入口において一般に90%を超えることがあり得るような、より高濃度の水素によって、膜を通る燃料の拡散が押し進められ、そこで、燃料は、カソードで酸素と反応することになり、それによって、電力生成処理過程の効率が低下する。PEM型燃料電池は、輸送装置に電力を供給するのに魅力的であるとはいえ、プロトン交換膜は、15ミクロンほどの薄さになり得る。拡散速度はPEMの厚さに反比例するので、燃料電池は、カソードへの膜を通る水素の相対的に大きな拡散から損害を受ける。また、水素は、カソードから膜を通して拡散する酸素と反応することによりアノードにおいて消費される。

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0003】

本発明の目的は、燃料電池内の燃料消費を100%近くまで向上させることと、電気生成処理過程それ自体の効率ばかりでなく燃料電池により電力を供給する必要がある送風機、ポンプ、およびその他の寄生負荷を考慮して可能な最大全体効率を有する燃料電池電力設備と、を含む。

【0004】

本発明は、例えば純水素燃料の場合に、排気（排出）が存在せず、また、カソードへと膜を横断する水素の拡散もアノードへの酸素の拡散もほとんど存在しないと、水素利用率が理論的には100%に近づくことになるという理解に、部分的に基づいている。本発明は、中位および小さな電力での定常状態作動のための水素流れ管理のモードが、燃料電池が

10

20

30

40

50

高い電流またはピーク電流を供給するときの水素流れ管理のモードとは異なり得るという事実、さらに基づいている。

【0005】

本発明によれば、実質的に純水素と空気により作動する燃料電池は、そのアノード流れ場を非排出（unvented）（または密閉）にし、それによって、アノード流れ場の中に拡散される窒素の濃度が、カソード酸化剤内の窒素のほぼ平均濃度（約85%）に安定することになり、それによって、カソードへとプロトン交換膜を通る水素の拡散が大幅に低減するほど十分低いレベル（約15%～20%）まで水素濃度が低下する。水素排気が存在せず、また、PEMを横断する拡散が低減すると、水素利用率は、0.4アンペア/cm²などといったいくぶん中程度のしきい値を超える電流密度に対して、98%またはそれ

10

【0006】

さらに本発明によれば、燃料電池の負荷がモニタされ、大きな電力またはピーク電力で作動するときには、アノード流れ場を周囲へまたは燃料排出物処理装置へと排出（または開放）することにより、付加的水素がアノード流れ場に供給できる。大きな電力を生成するときの大きな反応速度において、水素の比例損失がより小さくなる。従って、高い電力レベルより下で、すなわち大部分の時間の輸送装置における作動において、作動するとき、非排出にされた燃料反応物流れ場を有する燃料電池は、燃料流れ場の中の水素分圧の低下に起因し得る電気化学的効率のどのような損失も相殺および超えるほど十分高い水素利用率、すなわち約96%から98%を有することになる。

20

【発明を実施するための最良の形態】

【0007】

図1を参照すると、燃料電池電力設備10は、接触する関係で互いに積層された複数の個々の燃料電池から成る電池スタック組立体12を含むが、図1には単一の電池だけが例示される。燃料電池は、アノード電極14、カソード電極16、およびこれらの電極の間に配置された高分子電解質膜18を含む。各電極は、よく知られるように、触媒、多孔質支持プレート、および反応物流れ場から構成される。カソード16に隣接する水輸送プレート19（または冷媒プレート）が、冷媒ポンプ20、冷媒圧力弁21、および熱交換器22を含む冷媒制御ループに接続される。図示されていないが、例えば米国特許第5,503,944号に開示されているように当業技術で知られている、熱交換バイパス、および他の水管理装置を備えることもできる。ポンプ20および弁21は、水輸送プレート19を通りさらに熱交換器22を通るまたは回る流れの圧力および体積の両方を調節することになる。空気が、送風機26によりカソード酸化剤流れ場の入口マニホールド27に供給され、消耗された空気は、流れ場から出口マニホールド28を通して排気29へと流出する。水素または水素に富んだ気体の加圧供給源32からの燃料が、燃料圧力調整器34、燃料入口マニホールド35、アノード14の燃料流れ場、および燃料出口マニホールド36を通して、流れ制御弁37へと流れる。弁37は、開のとき、燃料流れ場を周囲39（または使用可能ないずれかの排気処理器）へと排出する。燃料流れ場の排出物は、送風機41を含む再循環ループを通して流れる。燃料再循環送風機は、アノード流れ場に亘って

30

40

【0008】

カソード酸化剤流れ場において、空気中のいくつかの酸素は、処理過程によって消費され、少量の酸素が、膜を通してアノードへと拡散する。酸化剤流れ場の入口における酸素濃度は、約21%であり、酸化剤流れ場の出口では、通常約10%になり得る。酸化剤流れ場の入口から出口への窒素の平均濃度は、従って、約85%である。窒素は、膜を通してアノードへと拡散するが、安定させるのであれば、アノードにおける窒素濃度は、カソードにおけるのと本質的に同じ、約80%～85%となる。本発明に従うと、燃料電池は、排気流れ弁37が閉状態で、通常作動される。これによって、再循環ループ内の窒素濃度は、窒素の分圧が膜のアノード側およびカソード側の両方においてほぼ同じになるまで増

50

加し、先に説明したように酸化剤流れ場の中の窒素の平均濃度、約80%から85%になる。これによって、アノード流れ場の中の水素濃度は、約15%から20%に制限され、アノード14からカソード16へと膜18を横断する拡散速度が大幅に低減する。

【0009】

15ミクロン厚みのPEMおよび0.4平方フィートの活性電池領域を含む20セルのPEM型燃料電池スタックを、ほぼ50°Cで試験した。反応物は、公称周囲圧力における空気と純水素であった。図2は、燃料排出が存在せずに60%の空気利用率でこのスタックを試験したときの平均電池電圧に対する電流密度を示す。図2は、一端を閉じた（dead-end）流れ場を用いる全体の水素利用率が、中程度の負荷に対して98%に到達すること、および、水素のモル分率が、20（パーセント）半ばで安定することを例示している。

10

【0010】

図3は、0.1アンペア毎平方センチメートルの一定電流密度における時間の関数としてのアノード流れ場の中の水素濃度と電圧を示す。このデータは、電池電圧に対する最小の影響で、水素濃度が約93%の最初の値から120分間の時間を通して約27%へと低下することを示している。時間に対する水素濃度の変化速度は、試験台に存在する電力設備とは無関係の体積によってこの試験においては、燃料電池電力設備で観察されることになるものよりはかなり遅くなった。

【0011】

いくつかの燃料電池では、大きな電力で作動するとき、アノード触媒に利用できる水素は、所望の負荷を供給するには不十分になり得る。本発明にさらに従うと、電流検出器40が、燃料電池電力設備の負荷43に供給する電力ライン42内の電流を検出する。検出器40は、負荷電流を示す信号を制御器46に提供し、この制御器46は、電流が、最大定格電流の50%から80%程度になり得る特定の大きさ、より一般的には、最大定格電流の約65%になり得る特定の大きさに到達するとき、排気流れ弁37を開にすることになる。これによって、実質的な窒素およびいくらかの残留水素が、アノード流れ場から周囲39に流れることになる。図には明確には図示されていないが、制御器46は、所望ならば、水素圧力制御弁34の設定を調整して、さまざまな電流レベルにおいてアノード14の流れ場への水素の適切な流れを確実に供給することもできる。

20

【0012】

さらに、制御器40は、水素排気流れ弁37を制御して、従来のように、始動または停止の初め、またはその他の時などに定期的に痕跡量の汚染物質を簡単にパージすることもできる。

30

【0013】

本発明の利点を最大にするために、燃料電池は、高い酸素利用率で作動することもでき、それによって、膜のカソード側の酸素の圧力が低く保持され、拡散による酸素のアノードへのクロスオーバが低減される。これによって、クロスオーバによる水素の消費が低減される。

【図面の簡単な説明】

【0014】

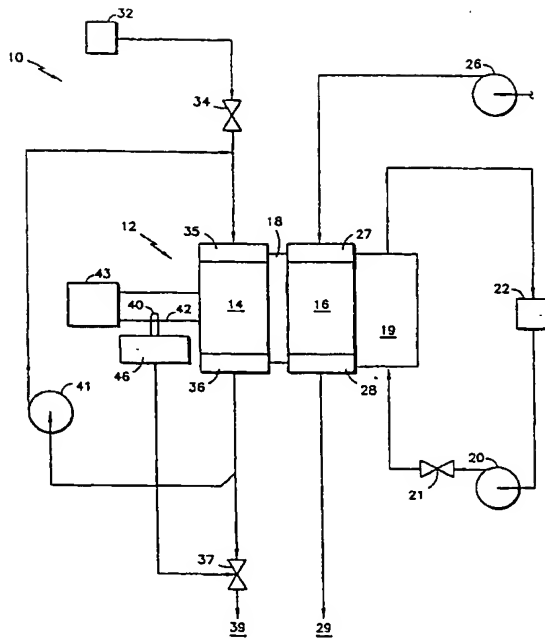
【図1】本発明を組み込んだPEM型燃料電池の概略図。

【図2】非排出にされた燃料流れ場を用いる中程度の電流密度の関数としての平均電池電圧と全体の水素利用率のグラフ。

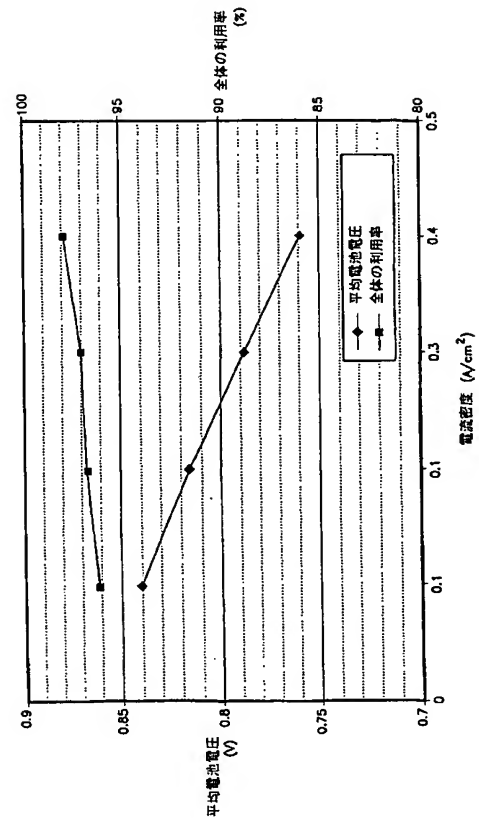
【図3】時間に対する電圧と水素のモル分率のグラフ。

40

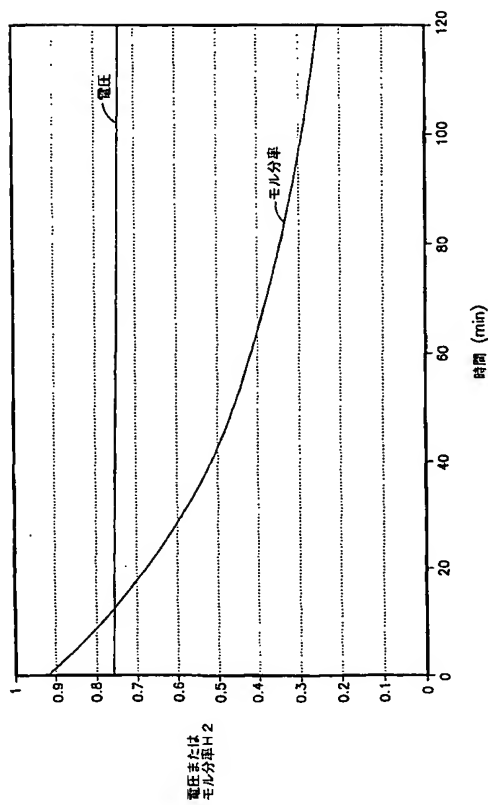
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【国際公開パンフレット】

(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

(19) World Intellectual Property Organization
International Bureau(43) International Publication Date
6 September 2002 (06.09.2002)

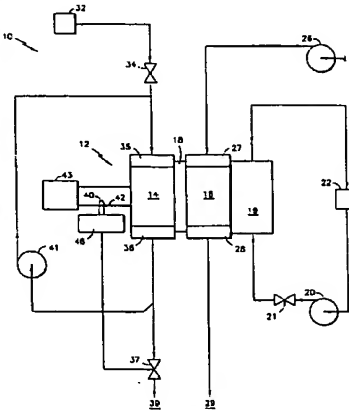
PCT

(10) International Publication Number
WO 02/069429 A1

- (51) International Patent Classification: H01M 8/04, H01M 8/02
(21) International Application Number: PCT/US02/04006
(22) International Filing Date: 11 February 2002 (11.02.2002)
(25) Filing Language: English
(26) Publication Language: English
(30) Priority Data: 09/793,175 26 February 2001 (26.02.2001) US
(71) Applicant: INTERNATIONAL FUEL CELLS, LLC
(US/US); 195 Governor's Highway, South Windsor, CT 06074 (US)
(72) Inventor: REISER, Carl, A.; 25 Orchard Street, Sturington, CT 06378 (US)
- (74) Agent: CRENSHAW, Henry, T., Jr.; Intellectual Property Attorney, UTC Fuel Cells, LLC, 195 Governor's Highway, MS 601-03, South Windsor, CT 06074 (US)
(81) Designated States (national): AR, AG, AI, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KL, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SI, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
(84) Designated States (regional): ARIPO patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW); Eurasian patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM); European patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR); OAPI patent

[Continued on next page]

(54) Title: HIGH FUEL UTILIZATION IN A FUEL CELL.



(57) Abstract: A FUEL cell (12) operating on substantially pure hydrogen (32) and air (26) has an exhaust flow control valve (37) at the exit of the anode fuel reactant flow field, said valve being normally closed during steady state low or medium power operation, so that the concentration of nitrogen in the fuel reactant flow fields, by diffusion across the membrane from the cathode, will approach the average concentration of nitrogen in the oxidant, thereby limiting the concentration of hydrogen to a corresponding low complementary amount, which reduces the diffusion of hydrogen across the membrane for overconsumption at the cathode, thereby increasing the efficiency of operation of the fuel cell. A current sensor (40) allows a controller (46) to open an exhaust flow control valve (37), thereby drawing much higher amounts of hydrogen into the fuel reactant flow field of the anode to support generation of power at high current densities without hydrogen starvation.

WO 02/069429 A1

WO 02/069429 A1 

(BF, BI, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NI, SN, TD, TG).

For two-letter codes and other abbreviations, refer to the "Guidance Notes on Codes and Abbreviations" appearing at the beginning of each regular issue of the PCT Gazette.

Published:

— with international search report

WO 02/069429

PCT/US02/04006

HIGH FUEL UTILIZATION IN A FUEL CELL**Technical Field**

This invention relates to causing a hydrogen/air fuel cell to utilize substantially all of the fuel reactant in the electrical production process through
5 mitigation of diffusion of the fuel to the cathode side as a result of low fuel concentration on the anode side.

Background Art

Consideration is being given to utilization of fuel cells, particularly proton exchange membrane (PEM) fuel cells operating with hydrogen-rich fuel reactant gas
10 and with air as the oxidant gas, for use in vehicles. Since all the fuel must be carried on board the vehicle, and since accessories that may enhance fuel cell performance must nonetheless be powered, electrically, by the fuel cell, thus reducing the overall power plant efficiency, the question of fuel cell efficiency becomes paramount. It is known that fuel cell performance suffers significantly whenever fuel gas is not
15 provided appropriately to the entire surface of the electrolyte. Therefore, it has been a common practice in the prior art to provide excess fuel to the fuel reactant flow fields in order to assure adequate fuel at the anode. However, the higher concentration of hydrogen, which typically may be over 90% at the inlet to the anode fuel flow field, drives the diffusion of the fuel through the membrane where it will react at the
20 cathode with oxygen, thus reducing the efficiency of the electric power generation process. Although PEM fuel cells are attractive for powering vehicles, the proton exchange membrane may be as thin as 15 microns. Since the diffusion rate is inversely proportional to the thickness of the PEM, they suffer from relatively high diffusion of hydrogen through the membrane to the cathode. Hydrogen is also
25 consumed at the anode by reaction with oxygen which diffuses through the membrane from the cathode.

Disclosure of the Invention

Objects of the invention include improving fuel consumption in a fuel cell to
30 nearly 100%, and a fuel cell power plant which has the highest possible overall efficiency, taking into account the efficiency of the electric generation process itself

WO 02/069429

PCT/US02/04006

and the parasitic loads, such as blowers and pumps and the like, which must be powered by the fuel cell.

The invention is predicated in part on the realization that, in the case of pure hydrogen fuel, for instance, if there is no exhaust (no vent), little diffusion of the hydrogen across the membrane to the cathode, and little diffusion of oxygen to the anode, the hydrogen utilization will, theoretically, approach 100%. The invention is further predicated on the fact that the mode of hydrogen flow management for medium and low power, steady state operation may be different from the mode of hydrogen flow management when the fuel cells are delivering high or peak currents.

According to the present invention, a fuel cell operating on substantially pure hydrogen and air has its anode flow field unvented, whereby the concentration of diffused nitrogen in the anode flow fields will stabilize at about the average concentration of nitrogen in the cathode oxidant (about 85%), thereby reducing the concentration of hydrogen to a sufficiently low level (about 15%-20%) that there is significant reduction in the diffusion of the hydrogen through the proton exchange membrane to the cathode. With no hydrogen exhaust and with reduced diffusion across the PEM, the utilization of hydrogen approaches 98% or greater for current densities exceeding some moderate threshold, such as 0.4 amps/cm².

According further to the invention, the load of the fuel cells is monitored, and when operating at high or peak power, additional hydrogen may be provided to the anode flow field by virtue of venting the anode flow field either to ambient or to fuel effluent processing apparatus. At the increased reaction rate when generating high power, the proportional loss of hydrogen is less. Thus, when operating below high power levels, which is most of the time in a vehicle, a fuel cell having an unvented fuel reactant flow field will have a sufficiently high utilization of hydrogen, about 96% to 98%, to offset and exceed any loss of electrochemical efficiency which may result from the reduction in hydrogen partial pressure in the fuel flow field.

Brief Description of the Drawings

Fig. 1 is a schematic illustration of a PEM fuel cell incorporating the present invention.

Fig. 2 is a chart of average cell voltage and overall hydrogen utilization as a function of moderate current densities with an unvented fuel flow field.

WO 02/069429

PCT/US02/04006

Fig. 3 is a plot of mole-fraction of hydrogen and voltage over time.

Mode(s) for Carrying Out the Invention

Referring to Fig. 1, a fuel cell power plant 10 includes a cell stack assembly 12 which comprises a plurality of individual fuel cells stacked together in contiguous relationship, although only a single cell is illustrated in Fig. 1. A fuel cell includes an anode electrode 14, a cathode electrode 16, and a polymer electrolyte membrane 18 disposed between the electrodes. Each electrode consists of a catalyst, a porous support plate and a reactant flow field as is well known. A water transport plate 19 (or coolant plate), adjacent to the cathode 16, is connected to a coolant control loop including a coolant pump 20, a coolant pressure valve 21, and a heat exchanger 22. There may be a heat exchange bypass and other water management apparatus, not shown, that are known in the art, for example, as disclosed in U.S. Patent No. 5,503,944. The pump 20 and valve 21 will regulate both the pressure and the volume of flow through the water transport plate 19 and through, or around, the heat exchanger 22. Air is supplied by a blower 26 to a cathode oxidant flow field inlet manifold 27, the depleted air exiting the flow field through an exit manifold 28 to exhaust 29. Fuel from a pressurized source 32 of hydrogen, or hydrogen rich gas, passes through a fuel pressure regulator 34, a fuel inlet manifold 35, the fuel flow field of the anode 14, and a fuel exit manifold 36 to a flow control valve 37. The valve 37, when open, vents the fuel flow field to ambient 39 (or any exhaust processor which may be used). The fuel flow field effluent passes through a recycle loop including a blower 41. The fuel recycle blower typically has a flow rate that is much greater than the fuel inlet flow rate in order to maintain a relatively uniform hydrogen composition across the anode flow field.

In the cathode oxidant flow field, some oxygen in the air is consumed by the process and a small amount of oxygen diffuses through the membrane to the anode. The oxygen concentration at the oxidant flow field inlet is about 21% and may typically be about 10% at the oxidant flow field outlet. The average concentration of nitrogen from inlet to outlet of the oxidant flow field is thus about 85%. The nitrogen diffuses through the membrane to the anode; if allowed to stabilize, the nitrogen concentration at the anode will be essentially the same as at the cathode, about 80% - 85%. In accordance with the invention, the fuel cell is normally operated with the

WO 02/069429

PCT/US02/04006

exhaust flow valve 37 closed. This results in nitrogen concentration in the recycle loop increasing until the partial pressure of nitrogen is nearly the same on both the anode and cathode sides of the membrane, which is the average concentration of nitrogen in the oxidant flow field, about 80% to 85% as previously described. This
 5 limits the hydrogen concentration in the anode flow fields to about 15% to 20%, which significantly reduces the rate of diffusion from the anode 14 across the membrane 18 to the cathode 16.

A twenty cell PEM fuel cell stack containing a 15 micron thick PEM and an active cell area of 0.4 square feet was tested at approximately 50°C. The reactants
 10 were pure hydrogen and air at nominally ambient pressure. Fig. 2 shows the current density versus average cell voltage when this stack was tested with no fuel vent and with an air utilization of 60%. Fig. 2 illustrates overall hydrogen utilization with a dead-ended flow field reaching 98% for moderate loads; the mole-fraction of hydrogen stabilizes in the mid-twenties (percent).

Fig. 3 shows the voltage and hydrogen concentration within the anode flow field as a function of time, at a fixed current density of 0.1 amps per square centimeter. This data shows that the hydrogen concentration decreases from an initial
 15 value of about 93% to about 27% over a period of 120 minutes with minimal effect on cell voltage. The rate of change in the hydrogen concentration versus time was much slower in the test than would be observed in a fuel cell power plant due to the
 20 extraneous volumes present in the test stand relative to a power plant.

In some fuel cells, when operating at high power, the hydrogen available to the anode catalyst may be insufficient to supply the desired load. In accordance
 further with the invention, a current sensor 40 senses the current in the power lines 42
 25 feeding the load 43 of the fuel cell power plant. The sensor 40 provides a signal indicative of the load current to a controller 46 which will open the exhaust flow valve 37 when the current reaches a certain magnitude, which may be on the order of 50% to 80% of maximum rated current, and may more typically be at about 65% of
 30 maximum rated current. This will cause substantial nitrogen and some residual hydrogen to flow from the anode flow fields to ambient 39. Although not shown in the figure for clarity, the controller 46 may also adjust the setting of the hydrogen pressure control valve 34, if desired, to ensure a proper flow of hydrogen to the flow fields of the anode 14 at various current levels.

WO 02/069429

PCT/US02/04006

The controller 40 may also control the hydrogen exhaust flow valve 37 so as to simply purge trace contaminants periodically, such as at the start of a start up or shut down, or otherwise, as is conventional.

To maximize the advantage of the present invention, the fuel cell may also
s be operated at high oxygen utilization, thereby keeping the pressure of oxygen on the cathode side of the membrane low, and reducing the crossover of oxygen to the anode by diffusion. This reduces consumption of hydrogen due to crossover.

WO 02/069429

PCT/US02/04006

Claims

1. A method of operating a fuel cell (12) having an anode (14) with an unvented fuel reactant flow field (35, 14, 36), a cathode (16) having an oxidant flow field (27, 16, 28), a proton exchange membrane (18) between said anode and said cathode, a source of hydrogen (32) for providing fuel to said fuel reactant flow field, a fuel recycle loop
5 including said fuel reactant flow field and a pump (41) for transferring effluent of said fuel reactant flow field to the inlet (35) of said fuel reactant flow field, and means (26) for providing air to said oxidant flow field, which method comprises:
operating said means to provide air (26) to said oxidant flow field;
delivering hydrogen from said source (32) to said fuel reactant flow field with
10 said recycle loop unvented; and
operating said pump (41);
the concentration of nitrogen in said fuel reactant flow field, by diffusion across said membrane, reaching the average concentration of nitrogen in the oxidant flow field, thereby forcing the percent mole-fraction of hydrogen concentration in the
15 anode flow field to be a corresponding, low complementary amount.
2. A method according to claim 1 further comprising:
providing said fuel reactant flow field (35, 14, 36) with an exhaust valve (37);
measuring (40) the current load (43) of said fuel cell; and
opening (46) said exhaust flow control valve when the current load exceeds a
5 predetermined threshold.
3. A method according to claim 2 wherein:
said predetermined threshold is between 50% and 80% of the maximum current rating of the fuel cell.
4. A method according to claim 2 wherein:
said predetermined threshold is about 65% of the maximum current rating of
the fuel cell.

WO 02/069429

PCT/US02/04006

5. A method according to claim 1 further comprising:
operating said fuel cell with hydrogen utilization in excess of a threshold
magnitude of about 96%.
6. A method according to claim 1 further comprising:
operating said fuel cell with oxygen utilization in excess of a threshold
magnitude of about 70%.
7. A method according to claim 1 wherein:
the percent mole-fraction of hydrogen concentration in the anode flow field is
on the order of 15%-20%.
8. A fuel cell power plant (10) comprising:
a fuel cell (12) including an anode (14) having a fuel reactant flow field (35,
14, 36), a fuel recycle loop including said fuel reactant flow field and a pump (41) for
transferring effluent (36) of said fuel reactant flow field to the inlet (35) of said fuel
s reactant flow field, a cathode (16) having an oxidant flow field (27, 16, 28), and a
proton exchange membrane (18) disposed between said anode and said cathode;
means (26) providing air to said oxidant flow field; and
means (32) for providing a flow of hydrogen to said fuel reactant flow field;
wherein the improvement comprises:
10 said fuel reactant flow field being unvented whereby the concentration of
nitrogen in said fuel reactant flow field, as a consequence of diffusion from the oxidant
reactant flow field, stabilizes at about the average concentration of nitrogen in the
oxidant flow field, thereby limiting the concentration of hydrogen to a corresponding,
low complementary amount.

WO 02/069429

PCT/US02/04006

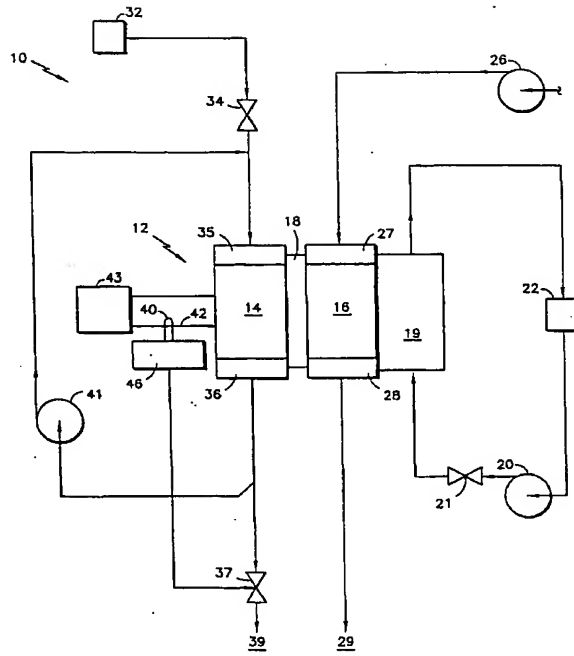
9. A power plant according to claim 8 wherein:
said fuel reactant flow field has an exhaust flow control valve (37);
and further comprising:
an electrical load (43) for said fuel cell;
means for sensing (40) the load current provided to said electrical load and
providing a current signal indicative thereof; and
a controller (46) responsive to said current signal for opening said exhaust
flow control valve in response to indications of current in excess of a predetermined
fraction of the maximum current load rating of said fuel cell.
10. A power plant according to claim 9 wherein said predetermined fraction is
between 50% and 80%.
11. A power plant according to claim 10 wherein said predetermined fraction is
about 65%.

WO 02/069429

PCT/US02/04006

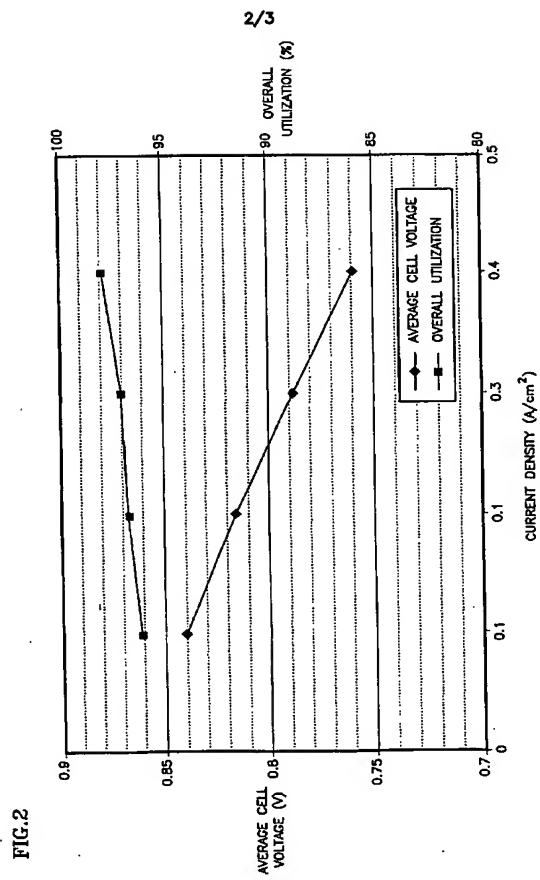
1/3

FIG. 1



WO 02/069429

PCT/US02/04006



【国際公開パンフレット（コレクトバージョン）】

(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

REVISED VERSION

(19) World Intellectual Property Organization
International Bureau(43) International Publication Date
6 September 2002 (06.09.2002)

PCT

(10) International Publication Number
WO 02/069429 A1

(51) International Patent Classification: H01M 8/04, 8/18

(72) Inventor: REISER, Carl, A.; 25 Orchard Street, Sturington, CT 06378 (US).

(21) International Application Number: PCT/US02/04006

(74) Agent: CRENSHAW, Henry, T., Jr.; Intellectual Property Attorney, UTC Fuel Cells, I.I.C., 195 Governor's Highway, MS 601-03, South Windsor, CT 06074 (US).

(22) International Filing Date: 11 February 2002 (11.02.2002)

(25) Filing Language: English

(26) Publication Language: English

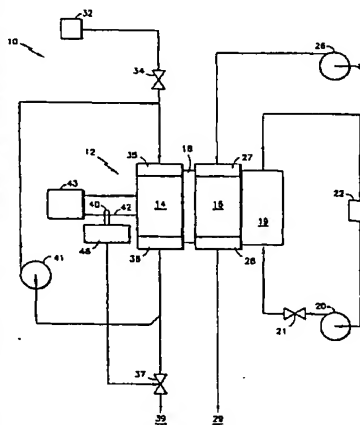
(30) Priority Data: 09/793,175 26 February 2001 (26.02.2001) US

(81) Designated States (national): AF, AG, AI, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KB, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SI, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(71) Applicant: INTERNATIONAL FUEL CELLS, LLC
(US/US): 195 Governor's Highway, South Windsor, CT 06074 (US).

[Continued on next page]

(54) Title: HIGH FUEL UTILIZATION IN A FUEL CELL



(57) Abstract: A PEM fuel cell (12) operating on substantially pure hydrogen (32) and air (26) has an exhaust flow control valve (37) at the exit of the anode fuel reactant flow field, said valve being normally closed during steady state low or medium power operation, so that the concentration of nitrogen in the fuel reactant flow fields, by diffusion across the membrane from the cathode, will approach the average concentration of nitrogen in the oxidant, thereby limiting the concentration of hydrogen to a corresponding low complementary amount, which reduces the diffusion of hydrogen across the membrane for consumption at the cathode, thereby increasing the efficiency of operation of the fuel cell. A current sensor (40) allows a controller (46) to open an exhaust flow control valve (37), thereby drawing much higher amounts of hydrogen into the fuel reactant flow field of the anode to support generation of power at high current densities without hydrogen starvation.

WO 02/069429 A1

WO 02/069429 A1

(84) Designated States (regional): ARIPO patent (GH, GM, KI, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),
Harmonized patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
European patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR,
GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI patent
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,
NI, SN, TD, TG).

Published:
— with international search report

(88) Date of publication of the revised international search
report: 7 August 2003

(15) Information about Correction:
see PCT Gazette No. 32/2003 of 7 August 2003, Section II

For two-letter codes and other abbreviations, refer to the "Guidance Notes on Codes and Abbreviations" appearing at the beginning of each regular issue of the PCT Gazette.

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2004/006
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC(7) : H01M 8/04, 8/18 US CL : 429/12, 13, 17 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) U.S. : 429/12, 13, 17 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EAST		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 5,648,182A (HARA et al) 15 July 1997 (15.07.1997), column 2, lines 35-65.	1-11
Y	US 5,605,770A (ANDREOLI et al) 25 February 1997 (25.02.1997), column, 2, lines 15-65.	1-11
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
Special categories of cited documents:		
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone	
"E" earlier application or patent published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is considered with one or more other such documents, such contribution being obvious to a person skilled in the art	
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reference (as specified)	"A" document, member of the same patent family	
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
Date of the actual completion of the international search 15 May 2002 (15.05.2002)	Date of mailing of the international search report 07 JUN 2002	
Name and mailing address of the ISA/IUS Communications of Patents and Trademarks Box PCT Washington, D.C. 20281 Facsimile No. (703)305-3230	Authorized officer Patrick Ryan Telephone No. 703-308-0661	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

フロントページの続き

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT, BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN, TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,ES,FI,GB,GD,GE, GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,ME,MK,MN,MW,MX,MZ,NO,NZ,OM,PH,P L,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,ZA,ZM,ZW

Fターム(参考) 5H027 AA06 BA13 BA16 BA19 CC06 DD05 KK31 KK56 MM08 MM09